## (12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

# (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



# 

# (43) 国際公開日 2003年11月13日(13.11.2003)

**PCT** 

# (10) 国際公開番号 WO 03/093657 A1

(OHNO,Kazushige) [JP/JP]; 〒501-0695 岐阜県 揖斐

郡 揖斐川町北方 1-1 イビデン株式会社大垣北工

(51) 国際特許分類?:

F01N 3/02

(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大野 一茂

場内 Gifu (JP).

ル Osaka (JP).

(21) 国際出願番号:

PCT/JP03/04479

(22) 国際出願日:

2003 年4 月9 日 (09.04.2003)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ: 特願2002-108538

2002年4月10日(10.04.2002) JP

(81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): イビデ ン株式会社 (IBIDEN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒503-8004 岐阜県 大垣市 神田町 2 丁目 1 番地 Gifu (JP).

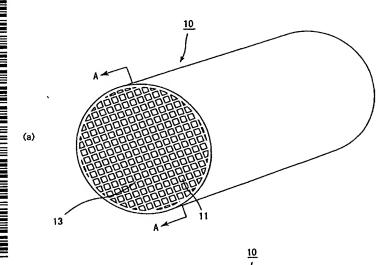
(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

(74) 代理人: 安富 康男 (YASUTOMI, Yasuo); 〒532-0011 大 阪府 大阪市 淀川区西中島 5 丁目 4 番20号 中央ビ

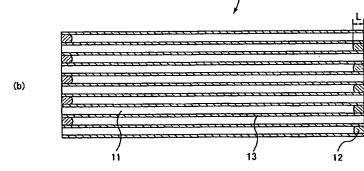
/続葉有1

(54) Title: HONEYCOMB FILTER FOR CLARIFYING EXHAUST GAS

(54) 発明の名称: 排気ガス浄化用ハニカムフィルタ



(57) Abstract: A honeycomb filter for clarifying an exhaust gas which is composed of a cylindrical article of a porous ceramic having a number of through holes so arranged as to be parallel with one another in the longitudinal direction thereof and as to be separated from one another by the wall portion thereof, wherein at one end of the cylindrical article, predetermined through holes are sealed by a filler, and at the other end thereof, the through holes not sealed at the above one end are sealed by a filler, and wherein a part or the whole of the wall portion functions as a filter for capturing particles, characterized in that a flexural strength F  $\alpha$  (MPa) of the honeycomb filter and a length L (mm) of the through holes in the longitudinal direction satisfies the relationship of F  $\alpha$  ×  $L \ge 30$ . The honeycomb filter for clarifying an exhaust gas is free from the occurrence of cracks or the loss of a filler during use and exhibits excellent durability.



WO 03/093657 A1



添付公開書類:
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

#### (57) 要約:

本発明の目的は、使用中にクラックや充填材の抜け落ちが発生することがなく、耐久性に優れる排気ガス浄化用ハニカムフィルタを提供することである。

本発明は、多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された、多孔質セラミックからなる柱状体の一方の端部で、上記貫通孔のうち、所定の貫通孔が充填材により充填され、一方、上記柱状体の他方の端部で、上記一方の端部で前記充填材により充填されていない貫通孔が充填材により充填され、上記壁部の一部又は全部が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハニカムフィルタであって、

上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタの曲げ強度  $F\alpha$ (MPa)と、上記充填材の上記貫通孔の長手方向の長さ L(mm)とが、 $F\alpha \times L \ge 30$  の関係を有することを特徴とする排気ガス浄化用ハニカムフィルタである。

# 明細書

# 排気ガス浄化用ハニカムフィルタ

#### 関連出願の記載

5 本出願は、2002年4月10日に出願された日本国特許出願2002-10 8538号を基礎出願として優先権主張する出願である。

#### 技術分野

本発明は、ディーゼルエンジン等の内燃機関から排出される排気ガス中のパテ 10 ィキュレート等を除去するフィルタとして用いられる排気ガス浄化用ハニカムフィルタに関する。

## 背景技術

25

バス、トラック等の車両や建設機械等の内燃機関から排出される排気ガス中に 15 含有されるパティキュレート (微粒子) が環境や人体に害を及ぼすことが最近問題となっている。

この排気ガスを多孔質セラミックに通過させ、排気ガス中のパティキュレート を捕集して、排気ガスを浄化することができるセラミックフィルタが種々提案さ れている。

20 このようなセラミックフィルタは、通常、一方向に多数の貫通孔が並設され、 貫通孔同士を隔てる隔壁がフィルタとして機能するようになっている。

即ち、セラミックフィルタに形成された貫通孔は、排気ガスの入り口側又は出口側の端部のいずれかが充填材により、所謂、市松模様となるように目封じされ、一の貫通孔に流入した排気ガスは、必ず貫通孔を隔てる隔壁を通過した後、他の貫通孔から流出するようになっており、排気ガスがこの隔壁を通過する際、パティキュレートが隔壁部分で捕捉され、排気ガスが浄化される。

このような排気ガスの浄化作用に伴い、ハニカムフィルタの貫通孔を隔てる隔 壁部分には、次第にパティキュレートが堆積し、目詰まりを起こして通気を妨げ るようになる。

5

15

20

25

これに対して、パティキュレートを捕集した後に、排気ガスの流入方向とは逆 方向に気流を流してパティキュレートを除去する逆洗浄方式のハニカムフィルタ が開発されているものの、システムが煩雑となるために実用的でない(特開平7 -332064号公報参照)。

このため、上記ハニカムフィルタでは、定期的にヒータ等の加熱手段を用いて 目詰まりの原因となっているパティキュレートを燃焼除去して再生する再生処理 を行う必要がある。

ところで、このような構造からなる従来のハニカムフィルタにおいて、上記排 気ガスの浄化が可能な領域(以下、濾過可能領域ともいう)は、排気ガス流入側 に開口した貫通孔の内壁部分であり、このハニカムフィルタの濾過可能領域をで きるだけ広く確保し、パティキュレート捕集中の背圧を低く保つためには、上記 充填材の貫通孔の長手方向の長さをできる限り短くすることが有益であった。

また、上記ハニカムフィルタの気孔率が低いものであると、パティキュレート 捕集中の背圧がすぐに高くなるため、上述したようなヒータ等の加熱手段を用い た再生処理を頻繁に行う必要があり、従来からハニカムフィルタの高気孔率化が 図られていた。

さらに、昨今、上記ハニカムフィルタの再生処理を、上述したようなヒータ等の加熱手段を用いる方法に代えて、ハニカムフィルタの気孔中に酸化触媒を担持させることで、上記ハニカムフィルタに流入してくる排気ガスに含まれる炭化水素と、上記酸化触媒とを反応させ、その際に発生する熱を利用したハニカムフィルタの再生処理を行う考え方がある。このようにして再生処理を行うハニカムフィルタでは、ハニカムフィルタの気孔中に酸化触媒を担持させているため、パティキュレートによる気孔の目詰まりが発生しやすいこと、及び、大量の熱を発生させるためには、できるだけ多くの酸化触媒を担持させる必要があること等の理由から、その気孔率を高くする必要があった。

このようにハニカムフィルタの気孔率を高くすることは、背圧が高くなりにく く、パティキュレートの捕集に優れたものとなり、また、酸化触媒を大量に担持

15

20

25

させることができるようになる。

しかしながら、上記ハニカムフィルタの気孔率を高くすることは、ハニカムフィルタ自体の強度を低下させることとなる。そのため、上記ハニカムフィルタを取り付けた排気ガス浄化装置をエンジン等の内燃機関の排気通路に設置し、実際に使用すると、排気ガスの圧力等の衝撃により隔壁にクラックが発生しやすくなっていた。

また、上述した通り、貫通孔の端部に充填された充填材は、ハニカムフィルタの濾過可能領域をできるだけ広く確保する目的で、上記充填材の貫通孔の長手方向の長さはできるだけ短くなるように形成されていたが、このようなハニカムフィルタでは、上記充填材と隔壁との接触面積が小さく、上記充填材の隔壁に対する接着強度が低くなっていた(特開2003-3823号公報参照)。

ところが、排気ガス流出側の充填材が充填された部分の隔壁は、排気ガスにより最も圧力等の衝撃を受ける部分であったため、上述したような高気孔率化に伴って曲げ強度が低下したハニカムフィルタでは、排気ガスの圧力等の衝撃により上記充填材が充填された部分の隔壁に容易にクラックが発生したり、上記充填材が抜け落ちたりし、耐久性に劣るものとなりがちであった。

## 発明の要約

本発明は、これらの問題を解決するためになされたもので、使用中にクラック や充填材の抜け落ちが発生することがなく、耐久性に優れる排気ガス浄化用ハニ カムフィルタを提供することを目的とするものである。

本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタは、多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された、多孔質セラミックからなる柱状体の一方の端部で、上記貫通孔のうち、所定の貫通孔が充填材により充填され、一方、上記柱状体の他方の端部で、上記一方の端部で前記充填材により充填されていない貫通孔が充填材により充填され、上記壁部の一部又は全部が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハニカムフィルタであって、

上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタの曲げ強度Fα(MPa)と、上記充填

材の上記貫通孔の長手方向の長さL(mm)とが、F $\alpha \times L \ge 30$ の関係を有することを特徴とするものである。

## 図面の簡単な説明

5 図1(a)は、本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタの一例を模式的に示した斜視図であり、図1(b)は、図1(a)に示したハニカムフィルタのAーA線断面図である。

図2は、本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタの別の一例を模式的に示した斜視図である。

10 図3(a)は、図2に示した本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタに用いる多孔質セラミック部材を模式的に示した斜視図であり、図3(b)は、そのB-B線縦断面図である。

図4(a)は、本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタを製造する際に使用する封口装置の一例を模式的に示した断面図であり、図4(b)は、図4(a)に示した封口装置の部分拡大断面図である。

図5は、本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタを製造する様子を模式的に 示した側面図である。

図6は、本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタを取り付けた排気ガス浄化 装置の一例を模式的に示した断面図である。

20 図 7 (a) は、図 6 に示した排気ガス浄化装置に用いるケーシングの一例を模式的に示した斜視図であり、図 7 (b) は、別のケーシングの一例を模式的に示した斜視図である。

図8(a)は、実施例に係るハニカムフィルタの曲げ強度と、充填材の長さとの関係を示したグラフであり、図8(b)は、比較例及び試験例に係るハニカムフィルタの曲げ強度と、充填材の長さとの関係を示したグラフである。

### 符号の説明

15

25

10、20 排気ガス浄化用ハニカムフィルタ

- 11、31 貫通孔
- 12、32 充填材
- 13 壁部
- 24 シール材層
- 5 25 セラミックブロック
  - 26 シール材層
  - 30 多孔質セラミック部材
  - 33 隔壁

## 10 発明の詳細な開示

15

本発明は、多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された、多孔質セラミックからなる柱状体の一方の端部で、上記貫通孔のうち、所定の貫通孔が充填材により充填され、一方、上記柱状体の他方の端部で、上記一方の端部で前記充填材により充填されていない貫通孔が充填材により充填され、上記壁部の一部又は全部が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハニカムフィルタであって、

上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタの曲げ強度  $F\alpha$ (MPa)と、上記充填材の上記貫通孔の長手方向の長さ L(mm)とが、 $F\alpha \times L \ge 30$  の関係を有することを特徴とする排気ガス浄化用ハニカムフィルタである。

- 20 なお、以下の説明において、「本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタ」の ことを、単に「本発明のハニカムフィルタ」ともいい、「充填材の上記貫通孔の 長手方向の長さ」のことを、単に「充填材の長さ」ともいうこととする。
  - 図1(a)は、本発明ハニカムフィルタの一例を模式的に示した斜視図であり、(b)は、そのAーA線断面図である。
- 25 図1(a)に示したように、本発明のハニカムフィルタ10は、多数の貫通孔 11が壁部13を隔てて長手方向に並設された一の多孔質セラミック焼結体から なる柱状体であり、壁部13の全部が粒子捕集用フィルタとして機能するように 構成されている。

25

即ち、ハニカムフィルタ10に形成された貫通孔11は、図1(b)に示したように、排気ガスの入り口側又は出口側のいずれかが充填材12により目封じされ、一の貫通孔11に流入した排気ガスは、必ず貫通孔11を隔てる壁部13を通過した後、他の貫通孔11から流出されるようになっている。

5 そして、本発明のハニカムフィルタ10に流入された排気ガス中に含まれるパ ティキュレートは、壁部13を通過する際、壁部13で捕捉され、排気ガスが浄 化されるようになっている。

このような構成のハニカムフィルタ10が内燃機関の排気通路に配設される排 気ガス浄化装置に設置されて使用される。

10 なお、上記排気ガス浄化装置については後述する。

本発明のハニカムフィルタ10では、ハニカムフィルタ10の曲げ強度 $F\alpha$ (MPa)と、充填材12の長さL(mm)との積、 $F\alpha \times L$ が30以上である。

本発明のハニカムフィルタ10の曲げ強度 $F\alpha$ とは、本発明のハニカムフィルタ10を構成する多孔質セラミック材料の曲げ強度のことであり、この曲げ強度 $F\alpha$ は、通常、貫通孔11の長手方向に垂直な面の大きさが34(mm)×34(mm)程度であり、貫通孔11の内壁に沿うように図3(a)に示すような角柱状のサンプルを切り出し、このサンプルを用いてIISR 1601に準じた3点曲げ試験を行い、破壊荷重、サンプルの大きさ、ハニカムの断面2次モーメント、スパン間距離から算出する。

20 本発明のハニカムフィルタ 10では、上記  $F\alpha \times L$ の下限を 30に設定しているため、ハニカムフィルタ 10の気孔率を高くすることによりその曲げ強度が低下した場合、即ち、上記  $F\alpha$ が小さくなった場合、充填材 12の長さ Lを曲げ強度が大きいハニカムフィルタに比べて長くする。

その結果、貫通孔11の端部に充填された充填材12と壁部13との接触面積が大きくなり、これらの接着強度がより優れたものとなる。そのため、貫通孔11の内部に流入してきた排気ガスによって、壁部13の充填材12が充填された部分にクラックが発生したり、充填材12が抜け落ちたりすることはない。

上記Fα×Lが30未満であると、ハニカムフィルタ10の曲げ強度Fαが小

さくなりすぎるか、又は、充填材12の長さしが短くなりすぎる。

5

10

15

20

25

上記 F α が小さくなりすぎる場合、本発明のハニカムフィルタに流入してくる 排気ガスによって、すぐにクラックが発生してしまい排気ガス浄化用のフィルタ として使用することができない。また、上記しが短くなりすぎる場合、貫通孔の 端部に充填された充填材の接着強度が低く、本発明のハニカムフィルタに排気ガスが流入してきた際の熱衝撃等によって上記充填材が抜け落ちてしまう。

また、本発明のハニカムフィルタ10において、上記 $F\alpha \times L$ は200以下であることが望ましい。上記 $F\alpha \times L$ が200を超えると、ハニカムフィルタ10の曲げ強度 $F\alpha$ が大きくなりすぎるか、又は、充填材12の長さLが長くなりすぎることとなる。

上記 $F\alpha$ が大きくなりすぎる場合、即ち曲げ強度が非常に大きなハニカムフィルタ10が製造された場合、このハニカムフィルタ10の気孔率が低くなる場合があるため、パティキュレート捕集中の背圧がすぐに高くなることがあり、頻繁にハニカムフィルタ10の再生処理を行う必要がある。また、充填材の長さしが長くなりすぎると、本発明のハニカムフィルタ10における排気ガスの濾過可能領域が小さくなり、やはりパティキュレート捕集中の背圧がすぐに高くなることがあり、頻繁にハニカムフィルタ10の再生処理を行う必要がある。

また、このような $F\alpha \times L$ が200を超えるようなハニカムフィルタでは、使用中に背圧が急激に上昇し、ハニカムフィルタの破壊やエンジン等の内燃機関にトラブルが発生することがある。

本発明のハニカムフィルタ10において、ハニカムフィルタ10の曲げ強度F $\alpha$ の大きさとしては特に限定されず、使用するセラミック材料や目的とするハニカムフィルタ10の気孔率等により決定されるが、 $1\sim60$  MPaであることが望ましい。上記F $\alpha$ が1MPa未満であると、上記F $\alpha$ × L $\geq$ 30の関係を満たすためには、充填材の長さLを非常に長くする必要があり、ハニカムフィルタの濾過可能領域が小さくなり、パティキュレート捕集中の背圧がすぐに高くなることがあり、頻繁にハニカムフィルタの再生処理を行う必要がある。また、排気ガスの圧力等の衝撃によって容易に破壊されることがあり、さらに、このような低

15

20

25

強度のハニカムフィルタは、製造すること自体が困難となることがある。一方、 上記F αが 6 0 M P a を超えると、ハニカムフィルタ 1 0 の気孔率が低くなって しまい、パティキュレート捕集中の背圧がすぐに高くなることがあり、頻繁にハ ニカムフィルタの再生処理を行う必要がある。

5 また、本発明のハニカムフィルタ10において、充填材12の長さLとしては 特に限定されず、例えば、0.5~40mmであることが望ましい。

上記しが 0.5 mm未満であると、ハニカムフィルタ 10の貫通孔 11に充填された充填材 12と、壁部 13との接触面積が小さく、これらの接着強度が低くなり、流入してくる排気ガスの圧力等の衝撃により充填材 12が充填された部分の壁部 13にクラックが生じたり、充填材 12が抜け落ちたりすることがある。一方、上記しが 40 mmを超えると、ハニカムフィルタ 10の排気ガスの濾過可能領域が少なくなってしまい、パティキュレート捕集中の背圧がすぐに高くなることがあり、ハニカムフィルタ 10の再生処理を頻繁に行う必要がある。さらに、このようなハニカムフィルタは、使用中に背圧が急激に上昇し、ハニカムフィルタの破壊やエンジン等の内燃機関にトラブルが発生することがある。

本発明のハニカムフィルタ10は多孔質セラミックからなるものである。

上記セラミックとしては特に限定されず、例えば、コージェライト、アルミナ、シリカ、ムライト等の酸化物セラミック、炭化ケイ素、炭化ジルコニウム、炭化チタン、炭化タンタル、炭化タングステン等の炭化物セラミック、及び、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、窒化ホウ素、窒化チタン等の窒化物セラミックを挙げることができるが、通常、コージェライト等の酸化物セラミックが使用される。安価に製造することができるとともに、比較的熱膨張係数が小さく、使用中に酸化されることがないからである。なお、上述したセラミックに金属珪素を配合した珪素含有セラミック、珪素や珪酸塩化合物で結合されたセラミックも用いることができる。

また、本発明のハニカムフィルタ10の気孔率は、上記したハニカムフィルタ 10の強度と大きな関連性を有し、その強度により変化するため、上述した強度 の範囲内となるように設定されるが、通常、30~80%程度であることが望ま

10

しい。気孔率が30%未満であると、ハニカムフィルタ10がすぐに目詰まりを 起こすことがあり、一方、気孔率が80%を超えると、ハニカムフィルタ10の 強度が低下して容易に破壊されることがある。

なお、上記気孔率は、例えば、水銀圧入法、アルキメデス法及び走査型電子顕 微鏡 (SEM) による観測等、従来公知の方法により測定することができる。

また、ハニカムフィルタ100平均気孔径は $5\sim100$   $\mu$  m程度であることが望ましい。平均気孔径が5  $\mu$  m未満であると、パティキュレートが容易に目詰まりを起こすことがある。一方、平均気孔径が100  $\mu$  mを超えると、パティキュレートが気孔を通り抜けてしまい、該パティキュレートを捕集することができず、フィルタとして機能することができないことがある。

また、図1(b)に示した通り、ハニカムフィルタ10には、排気ガスを流通させるための多数の貫通孔11が壁部13を隔てて長手方向に並設されており、この貫通孔11の入り口側又は出口側のいずれかが充填材12により目封じされている。

15 充填材 1 2を構成する材料としては特に限定されず、例えば、上述したセラミックを主成分とする材料を挙げることかできる。特に、ハニカムフィルタ 1 0 を構成するセラミック材料と同様の材料であることが望ましい。熱膨張率を同じものとすることができるため、使用時や再生処理時における温度変化に起因するクラックの発生を防止することができるからである。

20 ハニカムフィルタ10の大きさとしては特に限定されず、使用する内燃機関の 排気通路の大きさ等を考慮して適宜決定される。

また、その形状としては、柱状であれば特に限定されず、例えば、円柱状、楕円柱状、角柱状等任意の形状を挙げることができるが、通常、図1に示したように円柱状のものがよく用いられる。

25 また、本発明のハニカムフィルタにおいて、柱状体は、複数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された角柱形状の多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されて構成されていることが望ましい。上記柱状体が複数の多孔質セラミック部材に分割されているため、使用中に多孔質セラミック部材に作用

10

15

20

25

する熱応力を低減させることができ、本発明のハニカムフィルタを非常に耐熱性 に優れたものとすることができる。また、多孔質セラミック部材の個数を増減さ せることで自由にその大きさを調整することができる。

図2は、本発明のハニカムフィルタの別の一例を模式的に示した斜視図であり、 図3(a)は、図2に示したハニカムフィルタを構成する多孔質セラミック部材 の一例を模式的に示した斜視図であり、(b)は、そのB-B線断面図である。

図2に示したように、本発明のハニカムフィルタ20は、多孔質セラミック部材30がシール材層24を介して複数個結束されてセラミックブロック25を構成し、このセラミックブロック25の周囲にもシール材層26が形成されている。また、この多孔質セラミック部材30は、図3に示したように、長手方向に多数の貫通孔31が並設され、貫通孔31同士を隔てる隔壁33がフィルタとして機能するようになっている。

即ち、多孔質セラミック部材30に形成された貫通孔31は、図3(b)に示したように、排気ガスの入り口側又は出口側の端部のいずれかが充填材32により目封じされ、一の貫通孔31に流入した排気ガスは、必ず貫通孔31を隔てる隔壁33を通過した後、他の貫通孔31から流出されるようになっている。

また、セラミックブロック25の周囲に形成されたシール材層26は、ハニカムフィルタ20を内燃機関の排気通路に設置した際、セラミックブロック25の外周部から排気ガスが漏れ出すことを防止する目的で設けられているものである。なお、図3(b)中、矢印は排気ガスの流れを示している。

このような構成のハニカムフィルタ20が内燃機関の排気通路に配設された排気ガス浄化装置に設置され、内燃機関より排出された排気ガス中のパティキュレートは、このハニカムフィルタ20を通過する際に隔壁33により捕捉され、排気ガスが浄化される。

このようなハニカムフィルタ20は、極めて耐熱性に優れ、再生処理等も容易 であるため、種々の大型車両やディーゼルエンジン搭載車両等に使用されている。

このような構造の本発明のハニカムフィルタ 20の曲げ強度を $F\alpha'$  とし、充填材 32の長さをL' とすると、ハニカムフィルタ 20の曲げ強度 $F\alpha'$  と、充

填材32の長さL'とが、F $\alpha'$ ×L'  $\geq$ 30の関係を有する。

5

15

25

なお、本発明のハニカムフィルタ20の曲げ強度 $F\alpha'$ とは、本発明のハニカムフィルタ20を構成する多孔質セラミック材料の曲げ強度のことであり、この曲げ強度 $F\alpha'$ は、通常、角柱状の多孔質セラミック部材30を用いてJISR 1601に準じた3点曲げ試験を行い、破壊荷重、サンプルの大きさ、ハニカムの断面2次モーメント、スパン間距離から算出する。

多孔質セラミック部材30の材料としては特に限定されず、上述したセラミック材料と同様の材料を挙げることができるが、これらのなかでは、耐熱性が大きく、機械的特性に優れ、かつ、熱伝導率も大きい炭化ケイ素が望ましい。

10 また、多孔質セラミック部材30の気孔率及び平均気孔径は、上記図1を用いて説明した本発明のハニカムフィルタ10と同様の気孔率及び平均気孔径を挙げることができる。

このような多孔質セラミック部材 30を製造する際に使用するセラミックの粒径としては特に限定されないが、後の焼成工程で収縮が少ないものが望ましく、例えば、 $0.3\sim50\mu$  m程度の平均粒径を有する粉末 100 重量部と、 $0.1\sim1.0\mu$  m程度の平均粒径を有する粉末  $5\sim65$  重量部とを組み合わせたものが望ましい。上記粒径のセラミック粉末を上記配合で混合することで、多孔質セラミック部材 30 を製造することができるからである。

本発明のハニカムフィルタ20では、このような多孔質セラミック部材30が 20 シール材層24を介して複数個結束されてセラミックブロック25が構成されて おり、このセラミックブロック25の外周にもシール材層26が形成されている。

即ち、本発明のハニカムフィルタ20において、シール材層は、多孔質セラミック部材30間、及び、セラミックブロック25の外周に形成されており、多孔質セラミック部材30間に形成されたシール材層(シール材層24)は、複数の多孔質セラミック部材30同士を結束する接着剤層として機能し、一方、セラミックブロック25の外周に形成されたシール材層(シール材層26)は、本発明のハニカムフィルタ20を内燃機関の排気通路に設置した際、セラミックブロック25の外周から排気ガスが漏れ出すことを防止するための封止材として機能す

る。

20

25

上記シール材層(シール材層 2 4 及びシール材層 2 6 )を構成する材料としては特に限定されず、例えば、無機バインダー、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子からなるもの等を挙げることができる。

5 なお、上述した通り、本発明のハニカムフィルタ20において、シール材層は、 多孔質セラミック部材30間、及び、セラミックブロック25の外周に形成され ているが、これらのシール材層(シール材層24及びシール材層26)は、同じ 材料からなるものであってもよく、異なる材料からなるものであってもよい。さ らに、上記シール材層が同じ材料からなるものである場合、その材料の配合比は 10 同じものであってもよく、異なるものであってもよい。

上記無機バインダーとしては、例えば、シリカゾル、アルミナゾル等を挙げる ことができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上 記無機バインダーのなかでは、シリカゾルが望ましい。

上記有機バインダーとしては、例えば、ポリビニルアルコール、メチルセルロ 15 ース、エチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等を挙げることができる。 これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記有機バインダーのなかでは、カルボキシメチルセルロースが望ましい。

上記無機繊維としては、例えば、シリカーアルミナ、ムライト、アルミナ、シリカ等のセラミックファイバー等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記無機繊維のなかでは、シリカーアルミナファイバーが望ましい。

上記無機粒子としては、例えば、炭化物、窒化物等を挙げることができ、具体的には、炭化珪素、窒化珪素、窒化硼素等からなる無機粉末又はウィスカー等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記無機粒子のなかでは、熱伝導性に優れる炭化珪素が望ましい。

図2に示したハニカムフィルタ20では、セラミックブロック25の形状は円柱状であるが、本発明のハニカムフィルタにおいては、セラミックブロックの形状は円柱状に限定されることはなく、例えば、楕円柱状や角柱状等任意の形状の

15

20

25

ものを挙げることができる。

セラミックブロック 2 5 の外周に形成されたシール材層 2 6 の厚さとしては特に限定されず、例えば、0.3~1.0 mm程度であることが望ましい。0.3 mm未満であると、セラミックブロック 2 5 の外周から排気ガスが漏れ出す場合があり、一方、1.0 mmを超えると、排気ガスの漏れ出しは充分に防止することができるものの、経済性に劣るものとなる。

また、本発明のハニカムフィルタには、触媒が付与されていることが望ましい。 触媒が担持されていることで、本発明のハニカムフィルタは、排気ガス中のパティキュレートを捕集するフィルタとして機能するとともに、排気ガスに含有される上記CO、HC及びNOx等を浄化するための触媒担持体として機能することができる。

上記触媒としては、排気ガス中のCO、HC及びNOx等を浄化することができる触媒であれば特に限定されず、例えば、白金、パラジウム、ロジウム等の貴金属等を挙げることができる。また、貴金属に加えて、アルカリ金属(元素周期表 1 族)、アルカリ土類金属(元素周期表 2 族)、希土類元素(元素周期表 3 族)、遷移金属元素が加わることもある。

また、本発明のハニカムフィルタに上記触媒を付与する際には、予めその表面 に触媒担持膜を形成した後に、上記触媒を付与することが好ましい。これにより、比表面積を大きくして、触媒の分散度を高め、触媒の反応部位を増やすことができる。また、触媒担持膜によって触媒金属のシンタリングを防止することができるので、触媒の耐熱性も向上する。加えて、圧力損失を下げることを可能にする。

上記触媒担持膜としては、例えば、アルミナ、ジルコニア、チタニア、シリカ 等から構成される膜を挙げることができる。

上記触媒担持膜を形成する方法としては特に限定されないが、例えば、アルミナからなる触媒担持膜を形成する場合には、γ-A1<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末を溶媒に分散させたスラリー状溶液に浸漬する方法、ゾルゲル法等を挙げることができる。

なお、上記触媒を付与する場合には、本発明のハニカムフィルタの曲げ強度F

10

15

20

25

 $\alpha$ は、触媒付与後に測定することが望ましい。本発明のハニカムフィルタにおける上記  $F\alpha \times L \geq 30$  の関係は、排気ガス浄化装置に設置されて使用された際にハニカムフィルタが破損してしまうことを防止するための条件であるので、排気ガス浄化装置に設置される状態で測定することが望ましいからである。

上記触媒が担持された本発明のハニカムフィルタは、従来公知の触媒付DPF (ディーゼル・パティキュレート・フィルタ)と同様のガス浄化装置として機能 するものである。従って、ここでは、本発明のハニカムフィルタが触媒担持体と しても機能する場合の詳しい説明を省略する。

上述した通り、本発明のハニカムフィルタは、ハニカムフィルタの曲げ強度F  $\alpha$  と、充填材の貫通孔の長手方向の長さLとが、F $\alpha$  × L  $\geq$  3 0 の関係を有する。 即ち、本発明のハニカムフィルタでは、気孔率を高くすることでハニカムフィルタの曲げ強度F $\alpha$  が低下した場合であっても、上記F $\alpha$  × L が 3 0 以上となるように、充填材の貫通孔の長手方向の長さLを長くするため、充填材が充填された部分の壁部と該充填材との接触面積が大きくなり、これらの接着強度が優れたものとなる。

従って、本発明のハニカムフィルタを設置した排気ガス浄化装置をエンジン等の内燃機関の排気通路に取り付け、上記ハニカムフィルタの貫通孔に排気ガスを流入させても、貫通孔に流入してくる排気ガスの圧力等の衝撃により上記充填材が充填された部分の壁部にクラックが発生したり、上記充填材が抜け落ちたりすることがなく、本発明のハニカムフィルタは、耐久性に優れたものとなる。

次に、上述した本発明のハニカムフィルタの製造方法の一例について説明する。本発明のハニカムフィルタの構造が図1に示したような、その全体が一の焼結体から構成されたものである場合、まず、上述したようなセラミックを主成分とする原料ペーストを用いて押出成形を行い、図1に示したハニカムフィルタ10と略同形状のセラミック成形体を作製する。

上記原料ペーストとしては、例えば、上述したようなセラミックからなる粉末 にバインダー及び分散媒液を加えたものを挙げることができる。

上記バインダーとしては特に限定されず、例えば、メチルセルロース、カルボ

25

キシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリエチレングリコール、 フェノール樹脂、エポキシ樹脂等を挙げることができる。

上記バインダーの配合量は、通常、セラミック粉末100重量部に対して、1 ~10重量部程度が望ましい。

5 上記分散媒液としては特に限定されず、例えば、ベンゼン等の有機溶媒;メタ ノール等のアルコール、水等を挙げることができる。

上記分散媒液は、原料ペーストの粘度が一定範囲内となるように、適量配合される。

これらセラミック粉末、バインダー及び分散媒液は、アトライター等で混合し、 10 ニーダー等で充分に混練した後、押出成形して上記セラミック成形体を作製する。 また、上記原料ペーストには、必要に応じて成形助剤を添加してもよい。

上記成形助剤としては特に限定されず、例えば、エチレングリコール、デキストリン、脂肪酸石鹸、ポリアルコール等を挙げることができる。

さらに、上記原料ペーストには、必要に応じて酸化物系セラミックを成分とす 15 る微小中空球体であるバルーンや、球状アクリル粒子、グラファイト等の造孔剤 を添加してもよい。

上記バルーンとしては特に限定されず、例えば、アルミナバルーン、ガラスマイクロバルーン、シラスバルーン、フライアッシュバルーン(FAバルーン)及びムライトバルーン等を挙げることができる。これらのなかでは、フライアッシュバルーンが望ましい。

また、上記原料ペーストに使用する材料や配合比等は、後工程を経て製造する ハニカムフィルタの曲げ強度  $F\alpha$ が  $1\sim6$  0 M Pa となるように調整しておくことが望ましい。上述した本発明のハニカムフィルタにおいて説明した通り、このようなハニカムフィルタは、貫通孔に流入してくる排気ガスによって容易に破壊されることがなく、また、パティキュレート捕集中の背圧がすぐに高くなることがないからである。

なお、上記ハニカムフィルタの曲げ強度 Fαは、主に、使用するセラミック材料やその気孔率によって決定される値であり、このハニカムフィルタの気孔率の

制御は、上記原料ペーストに使用する材料、配合比等を調整することで可能となるのである。

ただし、上記ハニカムフィルタの気孔率は、上記セラミック成形体の焼成条件 等によってもある程度制御することは可能である。

5 そして、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機、熱風乾燥機、誘電乾燥機、減圧乾燥機、真空乾燥機及び凍結乾燥機等を用いて乾燥させてセラミック乾燥体とした後、所定の貫通孔に充填材となる充填材ペーストを充填し、上記貫通孔を目封じする封口処理を施す。

図4(a)は、上記封口処理を行う際に使用する封口装置の一例を模式的に示 10 した断面図であり、(b)は、その一部を示す部分拡大断面図である。

図4に示したように、上記封口処理で用いる封口装置100は、所定のパターンに開口部111aが形成されたマスク111が側面に設置され、その内部が充填材ペースト120で満たされた二組の密閉式の充填材吐出槽110が、マスク111が形成された側面同士を向かい合うように配設されている。

15 このような封口装置100を用いて上記セラミック乾燥体の封口処理を行うには、まず、セラミック乾燥体40の端面40aと、充填材吐出槽110の側面に形成されたマスク111とが当接するようにセラミック乾燥体40を充填材吐出槽110の間に固定する。

このとき、マスク111の開口部1111aとセラミック乾燥体40の貫通孔4 20 2とは、ちょうど対向する位置関係となっている。

続いて、充填材吐出槽110に、例えば、モノポンプ等のポンプを用いて一定の圧力を加えて、充填材ペースト120をマスク111の開口部111aより吐出させ、セラミック乾燥体40の貫通孔42の端部に充填材ペースト120を侵入させることで、セラミック乾燥体40の所定の貫通孔42に、充填材となる充填材ペースト120を充填することができる。

なお、上記封口処理で使用する封口装置は、上述したような封口装置100に 限定されることはなく、例えば、その内部に攪拌片が配設された開放式の充填材 吐出槽を備え、上記攪拌片を上下方向に移動させることにより、上記充填材吐出

10

15

25

槽に満たされた充填材ペーストを流動させ、該充填材ペーストの充填を行う方式 であってもよい。

なお、上記充填材ペーストのセラミック乾燥体の端面からの距離は、後工程を経て製造するハニカムフィルタの曲げ強度  $F\alpha$  と、充填材の長さ L とが  $F\alpha \times L$   $\geq 30$  の関係を有するものとなるように調整する。

具体的には、セラミック乾燥体の端面から0.5~40mmの範囲で充填材ペーストを充填することが望ましい。

上記充填材ペーストとしては特に限定されず、例えば、上記原料ペーストと同様のものを用いることができるが、上記原料ペーストで用いたセラミック粉末に 潤滑剤、溶剤、分散剤及びバインダーを添加したものであることが望ましい。

上記封口処理の途中で充填材ペースト中のセラミック粒子が沈降することを防止することができるからである。

このような充填材ペーストにおいて、上記セラミック粉末は、その平均粒径が大きな粗粉に、その平均粒径が小さな微粉が少量添加されたものであることが望ましい。上記微粉がセラミック粒子同士を接着させるからである。また、上記粗粉の平均粒径の下限は $5\,\mu$  mであることが望ましく、 $1\,0\,\mu$  mであることがより望ましい。また、上記粗粉の平均粒径の上限は $1\,0\,0\,\mu$  mであることが望ましく、 $5\,0\,\mu$  mであることがより望ましい。一方、上記微粉の平均粒径はサブミクロンであることが望ましい。

20 上記潤滑剤としては特に限定されず、例えば、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシプロピレンアルキルエーテル等からなるものを挙げることができる。

このような潤滑剤は、セラミック粉末100重量部に対して0.5~8重量部添加されることが望ましい。0.5重量部未満であると、充填材ペースト中のセラミック粒子の沈降速度が大きくなり、すぐに分離してしまうことがある。また、充填材ペーストの流路抵抗が高くなるためセラミック乾燥体の貫通孔内に充分に充填材ペーストを進入させることが困難となることがある。一方、8重量部を超えると、セラミック乾燥体を焼成する際の収縮が大きくなりクラックが発生しや

すくなる。

5

10

15

上記ポリオキシエチレンアルキルエーテル又はポリオキシプロピレンアルキルエーテルは、アルコールに酸化エチレン又は酸化プロピレンを付加重合させて製造されるものであり、ポリオキシエチレン(ポリオキシプロピレン)の一端の酸素にアルキル基が結合したものである。上記アルキル基としては特に限定されず、例えば、炭素数が3~22のものを挙げることができる。このアルキル基は、直鎖状のものでも、側鎖を有するものでもよい。

また、上記ポリオキシエチレンアルキルエーテルと、ポリオキシプロピレンアルキルエーテルとは、ポリオキシエチレンとポリオキシプロピレンとからなるブロックコポリマーにアルキル基が結合したものであってもよい。

上記溶剤としては特に限定されず、例えば、ジエチレングリコールモノー2ー エチルへキシルエーテル等を挙げることができる。

このような溶剤は、セラミック粉末100重量部に対して5~20重量部添加 されることが望ましい。この範囲を外れるとセラミック乾燥体の貫通孔に充填材 ペーストを充填することが困難となる。

上記分散剤としては特に限定されず、例えば、リン酸エステル塩からなる界面 活性剤を挙げることができる。上記リン酸エステル塩としては、例えば、ポリオ キシエチレンアルキルエーテルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルフェニル エーテルリン酸塩、アルキルリン酸塩等を挙げることができる。

20 このような分散剤は、セラミック粉末100重量部に対して0.1~5重量部 添加されることが望ましい。0.1重量部未満であると、セラミック粒子を充填 材ペースト中に均一に分散させることができないことがあり、一方、5重量部を 超えると、充填材ペーストの密度が低下するため、焼成時の収縮量が大きくなっ てクラック等が発生しやすくなる。

25 上記バインダーとしては特に限定されず、例えば、 (メタ) アクリル酸 n ーブ チル、 (メタ) アクリル酸 n ーペンチル、 (メタ) アクリル酸 n ーへキシル等の (メタ) アクリル酸エステル系化合物等を挙げることができる。

このようなバインダーは、セラミック粉末100重量部に対して1~10重量

部添加されることが望ましい。1重量部未満であると、セラミック粒子と他の添加剤との結合力を充分に確保することができないことがある。一方、10重量部を超えると、バインダーの量が多くなりすぎるため、焼成工程において収縮量が大きくなってクラック等が発生しやすくなる。

5 そして、上記充填材ペーストが充填されたセラミック乾燥体に、所定の条件で 脱脂、焼成を行うことにより、多孔質セラミックからなり、その全体が一の焼結 体から構成されたハニカムフィルタを製造する。

なお、上記セラミック乾燥体の脱脂及び焼成の条件等は、従来から多孔質セラミックからなるハニカムフィルタを製造する際に用いられている条件を適用する ことができる。

また、本発明のハニカムフィルタの構造が、図2に示したような、多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されて構成されたものである場合、まず、上述したセラミックを主成分とする原料ペーストを用いて押出成形を行い、図3に示した多孔質セラミック部材30のような形状の生成形体を作製する。

15 なお、上記原料ペーストは、上述した一の焼結体からなるハニカムフィルタに おいて説明した原料ペーストと同様のものを挙げることができるが、その配合比 は、上記一の焼結体からなるハニカムフィルタの場合と同様のものであってもよ く、異なった配合比のものであってもよい。

次に、上記生成形体を、マイクロ波乾燥機等を用いて乾燥させて乾燥体とした 20 後、該乾燥体の所定の貫通孔に充填材となる充填材ペーストを充填し、上記貫通 孔を目封じする封口処理を施す。

なお、上記封口処理は、充填材ペーストを充填する対象が異なるほかは、上述 したハニカムフィルタ10の場合と同様の方法を挙げることができる。

次に、上記封口処理を経た乾燥体に所定の条件で脱脂、焼成を行うことにより、 25 複数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された多孔質セラミック部材を製造 する。

なお、上記生成形体の脱脂及び焼成の条件等は、従来から多孔質セラミック部 材がシール材層を介して複数個結束されて構成されたハニカムフィルタを製造す

10

15

20

25

る際に用いられている条件等を適用することができる。

次に、図5に示したように、多孔質セラミック部材30が斜めに傾斜した状態 で積み上げることができるように、断面V字形状に構成された台80の上に、多 孔質セラミック部材30を傾斜した状態で載置した後、上側を向いた2つの側面 30a、30bに、シール材層24となるシール材ペーストを均一な厚さで塗布 してシール材ペースト層81を形成し、このシール材ペースト層81の上に、順 次他の多孔質セラミック部材30を積層する工程を繰り返し、所定の大きさの角 柱状の多孔質セラミック部材30の積層体を作製する。この際、角柱状の多孔質 セラミック部材30の積層体の4隅にあたる多孔質セラミック部材30には、四 角柱形状の多孔質セラミック部材30を2つに切断して作製した三角柱状の多孔 質セラミック部材30cと、三角柱状の多孔質セラミック部材30cと同じ形状 の樹脂部材82とを易剥離性の両面テープ等で貼り合わせてなるものを使用し、 多孔質セラミック部材30の積層が完了した後に、角柱状の多孔質セラミック部 材30の積層体の4隅を構成する樹脂部材82を全て取り除くことによって、角 柱状の多孔質セラミック部材30の積層体を断面多角柱状にしてもよい。これに より、角柱状の多孔質セラミック部材30の積層体の外周部を切削加工してセラ ミックブロック25を作製した後に廃棄されることとなる多孔質セラミック部材 からなる廃棄物の量を減らすことができる。

上記図5に示した方法以外であっても、断面多角柱状の多孔質セラミック部材30の積層体を作製する方法としては、作製するハニカムフィルタの形状に合わせて、例えば、4隅の多孔質セラミック部材を省略する方法、三角柱状の多孔質セラミック部材を組み合わせる方法等を用いることができる。また、もちろん四角柱状の多孔質セラミック部材30の積層体を作製してもよい。

なお、上記シール材ペーストを構成する材料としては、上述した本発明のハニ カムフィルタにおいて説明した通りであるのでここではその説明を省略する。

次に、この多孔質セラミック部材30の積層体を加熱してシール材ペースト層81を乾燥、固化させてシール材層24とし、その後、例えば、ダイヤモンドカッター等を用いて、その外周部を図2に示したような形状に切削することで、セ

25

ラミックブロック25を作製する。

そして、セラミックブロック25の外周に上記シール材ペーストを用いてシール材層26を形成することで、多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されて構成されたハニカムフィルタを製造することができる。

5 このようにして製造したハニカムフィルタはいずれも柱状であり、その構造は、 多数の貫通孔が壁部を隔てて並設されている。

ただし、ハニカムフィルタが、図1に示したような、その全体が一の焼結体からなる構造である場合、多数の貫通孔を隔てる壁部は、その全体が粒子捕集用フィルタとして機能するのに対し、ハニカムフィルタが、図2に示したような、多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束された構造である場合、多数の貫通孔を隔てる壁部は、多孔質セラミック部材を構成する隔壁と、当該多孔質セラミック部材を結束するシール材層とからなるため、その一部、即ち、多孔質セラミック部材のシール材層と接していない隔壁部分が粒子捕集用フィルタとして機能する。

15 本発明のハニカムフィルタは、エンジン等の内燃機関の排気通路に配設される 排気ガス浄化装置に設置されて使用される。なお、本発明のハニカムフィルタで は、捕集して堆積した微粒子を除去する再生処理の方法として、例えば、気流に より逆洗浄を行う方法、排気ガスを加熱して流入させる方法等が好適に用いられ る。

20 図 6 は、本発明のハニカムフィルタが設置された排気ガス浄化装置の一例を模式的に示した断面図である。なお、図 6 に示す本発明のハニカムフィルタでは、 捕集して堆積した微粒子を除去する再生処理の方法として、排気ガスを加熱して 流入させる方法が用いられている。

図6に示したように、排気ガス浄化装置600は、主に、本発明のハニカムフィルタ60、ハニカムフィルタ60の外方を覆うケーシング630、ハニカムフィルタ60とケーシング630との間に配置された保持シール材620、及び、ハニカムフィルタ60の排気ガス流入側に設けられた加熱手段610から構成されており、ケーシング630の排気ガスが導入される側の端部には、エンジン等

15

20

の内燃機関に連結された導入管 6 4 0 が接続されており、ケーシング 6 3 0 の他端部には、外部に連結された排出管 6 5 0 が接続されている。なお、図 6 中、矢印は排気ガスの流れを示している。

また、図6において、ハニカムフィルタ.60は、図1に示したハニカムフィルタ10であってもよく、図2に示したハニカムフィルタ20であってもよい。

このような構成からなる排気ガス浄化装置600では、エンジン等の内燃機関から排出された排気ガスは、導入管640を通ってケーシング630内に導入され、ハニカムフィルタ60の貫通孔から壁部(隔壁)を通過してこの壁部(隔壁)でパティキュレートが捕集されて浄化された後、排出管650を通って外部へ排出されることとなる。

そして、ハニカムフィルタ60の壁部(隔壁)に大量のパティキュレートが堆積し、背圧が高くなると、ハニカムフィルタ60の再生処理が行われる。

上記再生処理では、加熱手段610を用いて加熱されたガスをハニカムフィルタ60の貫通孔の内部へ流入させることで、ハニカムフィルタ60を加熱し、壁部(隔壁)に堆積したパティキュレートを燃焼除去させるのである。

保持シール材620を構成する材料としては特に限定されず、例えば、結晶質アルミナ繊維、アルミナーシリカ繊維、シリカ繊維等の無機繊維や、これらの無機繊維を一種以上含む繊維等を挙げることができる。

また、保持シール材620には、アルミナ及び/又はシリカが含有されていることが望ましい。保持シール材620の耐熱性及び耐久性が優れたものとなるからである。特に、保持シール材620は、50重量%以上のアルミナが含有されていることが望ましい。900~950℃程度の高温下であっても、弾性力が高くなり、ハニカムフィルタ60を保持する力が高まるからである。

また、保持シール材620には、ニードルパンチ処理が施されていることが望 25 ましい。保持シール材620を構成する繊維同士が絡み合い、弾性力が高くなり、 ハニカムフィルタ60を保持する力が向上するからである。

保持シール材620の形状としては、ハニカムフィルタ60の外周に被覆する ことができる形状であれば特に限定されず、任意の形状を挙げることができるが、

矩形状の基材部の一の辺に凸部が形成され、該一の辺に対向する辺に凹部が形成され、ハニカムフィルタ60の外周に被覆した際、上記凸部と凹部とがちょうど 嵌合されるような形状であることが望ましい。ハニカムフィルタ60の外周に被 覆した保持シール材620にズレが発生しにくくなるからである。

5 ケーシング 6 3 0 の材質としては特に限定されず、例えば、ステンレス等を挙 げることができる。

また、その形状は特に限定されず、図7(a)に示したケーシング71のような筒状であってもよく、(b)に示したケーシング72のような筒をその軸方向に2分割した2分割シェル状であってもよい。

10 また、ケーシング630の大きさは、ハニカムフィルタ60を、保持シール材620を介して内部に設置することができるように適宜調整される。そして、図6に示したように、ケーシング630の一端面には、排気ガスを導入させる導入管640が接続され、他端面には、排気ガスを排出させる排出管650が接続されるようになっている。

15 加熱手段610は、上述した通り、ハニカムフィルタ60の再生処理において、 ハニカムフィルタ60の壁部(隔壁)に堆積したパティキュレートを燃焼除去さ せるために、貫通孔の内部に流入させるガスを加熱するために設けられており、 このような加熱手段610としては特に限定されず、例えば、電気ヒータやバー ナー等を挙げることができる。

20 なお、上記貫通孔の内部に流入させるガスとしては、例えば、排気ガスや空気等を挙げることができる。

また、このような排気ガス浄化装置では、図6に示したように、ハニカムフィルタ60の排気ガス流入側に設けた加熱手段610によりハニカムフィルタ60 を加熱するような方式であってもよく、例えば、ハニカムフィルタに酸化触媒を担持させ、この酸化触媒を担持させたハニカムフィルタに炭化水素を流入させることで、上記ハニカムフィルタを発熱させる方式であってもよく、また、ハニカムフィルタの排気ガス流入側に酸化触媒を配置し、該酸化触媒に炭化水素を供給することで発熱させ、上記ハニカムフィルタを加熱する方式であってもよい。

25

酸化触媒と炭化水素との反応は、発熱反応であるので、この反応時に発生する 多量の熱を利用することにより、排気ガスの浄化と並行して、ハニカムフィルタ の再生を行うことができる。

このような本発明のハニカムフィルタを設置した排気ガス浄化装置を製造する 5 には、まず、本発明のハニカムフィルタの外周に被覆する保持シール材を作製す る。

上記保持シール材を作製するには、まず、結晶質アルミナ繊維、アルミナーシリカ繊維、シリカ繊維等の無機繊維や、これらの無機繊維を一種以上含む繊維等を用いて無機質マット状物(ウェッブ)を形成する。

10 また、上記無機質マット状物を形成する方法としては特に限定されず、例えば、 上述した繊維等を、接着剤を含んだ溶液中に分散させ、紙を作る抄紙機等を利用 して無機質マット状物を形成する方法等を挙げることができる。

また、上記無機質マット状物にニードルパンチ処理を施すことが望ましい。ニードルパンチ処理を施すことにより、繊維同士を絡み合わせることができ、弾性力が高く、ハニカムフィルタを保持する力に優れる保持シール材を作製することができるからである。

その後、上記無機質マット状物に切断加工を施して、例えば、上述したような 矩形状の基材部の一の辺に凸部が設けられ、該一の辺に対向する辺に凹部が設け られたような形状の保持シール材を作製する。

20 次に、本発明のハニカムフィルタの外周に上記保持シール材を被覆し、該保持 シール材を固定する。

上記保持シール材を固定する手段としては特に限定されず、例えば、接着剤で貼着したり、紐状体で縛る手段等を挙げることができる。また、特別な手段で固定をせず、ハニカムフィルタに被覆しただけの状態で、次の工程に移行しても差し支えない。なお、上記紐状体は、熱で分解する材料であってもよい。ケーシング内にハニカムフィルタを設置した後であれば、紐状体が熱により分解してもハニカムフィルタはケーシング内に設置されているので、保持シール材が剥がれてしまうことはないからである。

15

20

25

次に、上記工程を経たハニカムフィルタをケーシング内に設置する。

なお、上記ケーシングの材料、形状及び構成等については、上述した通りであるのでここでは、その説明を省略する。

ハニカムフィルタを、ケーシング内に設置する方法としては、上記ケーシングが筒状のケーシング71である場合(図7(a))、例えば、保持シール材が被覆されたハニカムフィルタをその一端面から押し込み、所定の位置に設置した後、導入管、配管及び排出管等と接続するための端面を、ケーシング71の両端部に形成する方法を挙げることができる。なお、ケーシング71は有底の筒状であってもよい。

10 この際、固定したハニカムフィルタが容易に移動しないように、かなりの力を加えた状態で、ようやく押し込むことができる程度に、保持シール材の厚さ、ハニカムフィルタの大きさ、ケーシング71の大きさ等を調整する必要がある。

また、図7(b)に示したように、上記ケーシングの形状が2分割シェル状のケーシング72である場合には、例えば、ハニカムフィルタを半筒状の下部シェル72b内の所定箇所に設置した後、上部固定部73に形成した貫通孔73aと、下部固定部74に形成した貫通孔74aとがちょうど重なるように、半筒状の上部シェル72aを下部シェル72bの上に載置する。そして、ボルト75を貫通孔73a、74aに挿通しナット等で固定することで、上部シェル72aと下部シェル72bとを固定する。そして、導入管、配管及び排出管等と接続するための開口を有する端面を、ケーシング72の両端部に形成する方法を挙げることができる。この場合にも、固定したハニカムフィルタが移動しないように、保持シール材の厚さ、ハニカムフィルタの大きさ、ケーシング72の大きさ等を調整する必要がある。

この2分割シェル状のケーシング72は、内部に設置したハニカムフィルタの 取替えが、筒状のケーシング71よりも容易である。

次に、本発明のハニカムフィルタの再生処理を行う際に、ハニカムフィルタの 貫通孔内に流入させるガスを加熱するための加熱手段を設ける。

上記加熱手段としては特に限定されず、例えば、電気ヒータやバーナー等を挙

げることがでる。

また、上記加熱手段は、通常、ケーシング内に設置したハニカムフィルタの排 気ガス流入側の端面近傍に設ける。

なお、上記排気ガス浄化装置において説明した通り、上述したような加熱手段 を設けずに、本発明のハニカムフィルタに酸化触媒を担持させてもよく、ハニカムフィルタの排気ガス流入側に酸化触媒を配置してもよい。

次に、本発明のハニカムフィルタと加熱手段とを内部に設置したケーシングを 内燃機関の排気通路に接続することで本発明のハニカムフィルタを設置した排気 ガス浄化装置を製造することができる。

10 具体的には、上記ケーシングの加熱手段が設けられた側の端面をエンジン等の 内燃機関に連結された導入管に接続し、他端面を外部へ連結された排出管に接続 する。

発明を実施するための最良の形態

15 以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例 のみに限定されるものではない。

#### (実施例1)

(1) 平均粒径 $10\mu$ mの $\alpha$ 型炭化珪素粉末70重量%と、平均粒径 $0.5\mu$ 20 mの $\beta$ 型炭化珪素粉末30重量%とを湿式混合し、得られた混合物100重量部に対して、有機バインダー(メチルセルロース)を10重量部、水を18重量部、造孔剤(球状アクリル粒子、平均粒径 $10\mu$ m)を3重量部加えて混練して原料ペーストを調製した。

次に、上記原料ペーストを押出成形機に充填し、押出速度10cm/分にて図 3に示した多孔質セラミック部材30と略同形状のセラミック成形体を作製し、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させてセラミック乾燥体とした。

次に、平均粒径10μmのα型炭化珪素粉末60重量%と、平均粒径0.5μ

20

この充填材ペーストを図4に示した封口装置100の充填材吐出槽110に充填し、上記工程で作製したセラミック乾燥体を所定の位置に移動、固定し、充填材吐出槽110を移動させることにより、マスク111をセラミック乾燥体の端面に当接させた。このとき、マスク111の開口部111aとセラミック乾燥体の貫通孔とは、ちょうど対向する位置関係となっている。

続いて、モノポンプを用いて充填材吐出槽110に所定の圧力を印加すること 15 により、充填材ペーストをマスク111の開口部111aより吐出させ、セラミック乾燥体の貫通孔の端部に進入させる封口処理を行った。

このとき、上記充填材ペーストは、焼成後に形成される充填材の貫通孔の長手 方向の長さが 0.75 mmとなるように充填した。

そして、上記封口処理を行ったセラミック乾燥体を、再びマイクロ波乾燥機を用いて乾燥させた後、400℃で脱脂し、常圧のアルゴン雰囲気下2200℃、4時間で焼成を行うことにより、図2に示したような、その大きさが33mm×33mm×300mmで、貫通孔の数が31個/cm²、隔壁の厚さが0.3mmの炭化珪素焼結体からなる多孔質セラミック部材を製造した。

(2)繊維長0.2mmのアルミナファイバー19.6重量%、平均粒径0.
 6μmの炭化珪素粒子67.8重量%、シリカゾル10.1重量%及びカルボキシメチルセルロース2.5重量%を含む耐熱性の接着剤ペーストを用いて上記多孔質セラミック部材を、図5を用いて説明した方法により多数結束させ、続いて、ダイヤモンドカッターを用いて切断することにより、図2に示したような直径が

165mmで円柱形状のセラミックブロックを作製した。

次に、無機繊維としてアルミナシリケートからなるセラミックファイバー(ショット含有率:3%、繊維長:0.1~100mm)23.3重量%、無機粒子として平均粒径0.3 $\mu$ mの炭化珪素粉末30.2重量%、無機バインダーとしてシリカゾル(ゾル中のSiO2の含有率:30重量%)7重量%、有機バインダーとしてカルボキシメチルセルロース.0.5重量%及び水39重量%を混合、混練してシール材ペーストを調製した。

次に、上記シール材ペーストを用いて、上記セラミックブロックの外周部に厚さ1.0mmのシール材ペースト層を形成した。そして、このシール材ペースト層を120℃で乾燥して、図2に示したような円柱形状の炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

このようにして製造したハニカムフィルタの平均気孔径は $10\mu$ mであり、気孔率は40%であり、曲げ強度は40MPaであった。また、充填材の貫通孔の長手方向の長さは0.75mmであり、上記ハニカムフィルタの曲げ強度と、充填材の長さとの積は30であった。

#### (実施例2)

10

15

25

充填材の貫通孔の長手方向の長さが3mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例1と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

20 本実施例2に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は120 であった。

### (実施例3)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが5mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例1と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例3に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は200 であった。

### (比較例1)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが 0.5 mmとなるように充填材ペーストの 充填を行ったほかは、実施例 1 と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製 造した。

本比較例1に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は20で 5 あった。

## (試験例1)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが6mmとなるように充填材ペーストの充填 を行ったほかは、実施例1と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造し た。

10 本試験例1に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は240であった。

### (実施例4)

15

20

次に、上記原料ペーストを押出成形機に充填し、押出速度10cm/分にてセラミック成形体を作製し、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させて図3に示した多孔質セラミック部材30と略同形状のセラミック乾燥体とした。

次に、実施例1と同様にして充填材ペーストを調製し、上記セラミック乾燥体の封口処理を行った。このとき、上記充填材ペーストは、焼成後に形成された充填材の貫通孔の長手方向の長さが4.3mmとなるように充填した。

25 そして、上記封口処理を行ったセラミック乾燥体を、実施例1と同条件で脱脂、 焼成処理を行って多孔質セラミック部材を製造した。

そして、実施例1の(2)と同様にして、図2に示したような円柱形状の炭化 珪素からなるハニカムフィルタを製造した。 このようにして製造したハニカムフィルタの平均気孔径は $10\mu m$ であり、気孔率は60%であり、曲げ強度は7MPaであった。また、充填材の貫通孔の長手方向の長さは4.3mmであり、上記ハニカムフィルタの曲げ強度と、充填材の長さとの積は30.1であった。

## 5 (実施例5)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが15mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例4と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例5に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は105 10 であった。

## (実施例6)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが28.5mmとなるように充填材ペースト の充填を行ったほかは、実施例4と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを 製造した。

15 本実施例 6 に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は199. 5 であった。

### (比較例2)

20

充填材の貫通孔の長手方向の長さが4mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例4と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

本比較例2に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は28で あった。

#### (試験例2)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが30mmとなるように充填材ペーストの充 25 填を行ったほかは、実施例4と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造 した。

本試験例2に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は210 であった。

20

25

# (実施例7)

平均粒径 $10\mu$ mの $\alpha$ 型炭化珪素粉末70重量%と、平均粒径 $0.5\mu$ mの $\beta$ 型炭化珪素粉末30重量%とを湿式混合し、得られた混合物100重量部に対して、有機バインダー(メチルセルロース)を15重量部、水を22重量部、造孔剤(球状アクリル粒子、平均粒径 $10\mu$ m)を5重量部加えて混練して原料ペーストを調製した。

次に、上記原料ペーストを押出成形機に充填し、押出速度10cm/分にてセラミック成形体を作製し、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させて図3に示した多孔質セラミック部材30と略同形状のセラミック乾燥体とした。

次に、実施例1と同様にして充填材ペーストを調製し、上記セラミック乾燥体の封口処理を行った。このとき、上記充填材ペーストは、焼成後に形成された充填材の貫通孔の長手方向の長さが1.5mmとなるように充填した。

そして、上記封口処理を行ったセラミック乾燥体を、実施例1と同条件で脱脂、 15 焼成処理を行って多孔質セラミック部材を製造した。

そして、実施例1の(2)と同様にして、図2に示したような円柱形状の炭化 珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

このようにして製造したハニカムフィルタの平均気孔径は $10\mu$ mであり、気孔率は50%であり、曲げ強度は20MPaであった。また、充填材の貫通孔の長手方向の長さは1.5mmであり、上記ハニカムフィルタの曲げ強度と、充填材の長さとの積は30であった。

# (実施例8)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが6mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例7と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例8に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は120 であった。

# (実施例9)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが10mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例7と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例9に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は200 5 であった。

## (比較例3)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが1mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例7と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

10 本比較例3に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は20であった。

## (試験例3)

15

20

25

充填材の貫通孔の長手方向の長さが12mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例7と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

本試験例3に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は240 であった。

#### (実施例10)

平均粒径 $10\mu m$ の $\alpha$ 型炭化珪素粉末60重量%と、平均粒径 $0.5\mu m$ の $\beta$ 型炭化珪素粉末40重量%とを湿式混合し、得られた混合物100重量部に対して、有機バインダー(メチルセルロース)を5重量部、水を10重量部加えて混練して原料ペーストを調製した。

次に、上記原料ペーストを押出成形機に充填し、押出速度10cm/分にてセラミック成形体を作製し、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させて図3に示した多孔質セラミック部材30と略同形状のセラミック乾燥体とした。

次に、実施例1と同様にして充填材ペーストを調製し、上記セラミック乾燥体の封口処理を行った。このとき、上記充填材ペーストは、焼成後に形成された充

填材の貫通孔の長手方向の長さが0.5mmとなるように充填した。

そして、上記封口処理を行ったセラミック乾燥体を、実施例1と同条件で脱脂、 焼成処理を行って多孔質セラミック部材を製造した。

そして、実施例1の(2)と同様にして、図2に示したような円柱形状の炭化5 珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

このようにして製造したハニカムフィルタの平均気孔径は $10\mu$ mであり、気孔率は30%であり、曲げ強度は60MPaであった。また、充填材の貫通孔の長手方向の長さは0.5mmであり、上記ハニカムフィルタの曲げ強度と、充填材の長さとの積は30であった。

## 10 (実施例11)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが2mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例10と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例11に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は12 15 0であった。

### (実施例12)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが3.3mmとなるように充填材ペーストの 充填を行ったほかは、実施例10と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを 製造した。

20 本実施例12に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は19 8であった。

#### (比較例4)

25

充填材の貫通孔の長手方向の長さが 0.3 mmとなるように充填材ペーストの 充填を行ったほかは、実施例 10と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを 製造した。

本比較例4に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は18であった。

## (試験例4)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが4mmとなるように充填材ペーストの充填 を行ったほかは、実施例10と同様に炭化珪素からなるハニカムフィルタを製造 した。

本試験例4に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は240 5 であった。

## (実施例13)

10

15

(1) 平均粒径 $10\mu$ mの $9\nu$ 040重量部、平均粒径 $9\mu$ mのカオリン10重量部、平均粒径 $9.5\mu$ mのアルミナ17重量部、平均粒径 $5\mu$ mの水酸化アルミニウム16重量部、平均粒径 $10\mu$ mのシリカ15重量部、平均粒径 $10\mu$ mのグラファイト30重量部、成形助剤(エチレングリコール)17重量部、水25重量部加えて混練して原料ペーストを調製した。

次に、上記原料ペーストを押出成形機に充填し、押出速度10cm/分にて図1に示したハニカムフィルタ10と略同形状のセラミック成形体を作製し、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させてセラミック乾燥体とした。

次に、平均粒径 $10\mu$ mの $9\nu$ 040重量部、平均粒径 $9\mu$ mのカオリン10 重量部、平均粒径 $9.5\mu$ mのアルミナ17重量部、平均粒径 $5\mu$ mの水酸化アルミニウム16重量部、平均粒径 $10\mu$ mのシリカ15重量部、ポリオキシエチレンモノブチルエーテルからなる潤滑剤(日本油脂社製、商品名:ユニルーブ) 4重量部、ジエチレングリコールモノー2-エチルへキシルエーテルからなる溶剤(協和発酵社製、商品名:OX-20)11重量部、リン酸エステル系化合物からなる分散剤(第一工業製薬社製、商品名:プライサーフ)2重量部、及び、メタクリル酸n-ブチルをOX-20で溶解したバインダー(東栄化成社製、商品名:バインダーD)5重量部を配合して均一に混合することにより充填材ペーストを調製した。

この充填材ペーストを用いて実施例1と同様の方法により、上記セラミック乾燥体の封口処理を行った。

このとき、上記充填材ペーストは、焼成後に形成される充填材の貫通孔の長手

10

方向の長さが7.5mmとなるように充填した。

ただし、本実施例13に係るセラミック乾燥体の端面形状と、実施例1に係るセラミック乾燥体の端面形状とは、全く異なる形状であるため、上記封口処理では、実施例1に係るセラミック乾燥体の封口処理に用いたマスクとは異なるマスクを用いた。

即ち、本実施例13に係るセラミック乾燥体の封口処理では、該セラミック乾燥体の貫通孔と、ちょうど対向する位置に開口部を有するマスクを用いた。

そして、上記封口処理を行ったセラミック乾燥体を、再びマイクロ波乾燥機を 用いて乾燥させた後、400℃で脱脂し、常圧のアルゴン雰囲気下1400℃、 3時間で焼成を行うことにより、図1に示したような、直径165mm、幅30

0mmで円柱形状のコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。 このようにして製造したハニカムフィルタの気孔率は60%であり、曲げ強度 は4MPaであった。また、充填材の貫通孔の長手方向の長さは7.5mmであ り、上記ハニカムフィルタの曲げ強度と、充填材の長さとの積は30であった。

15 (実施例14)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが20mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例13と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例14に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は80 20 であった。

(実施例15)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが50mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例13と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

25 本実施例 1 5 に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は 2 0 0 であった。

(比較例5)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが7mmとなるように充填材ペーストの充填

を行ったほかは、実施例13と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタ を製造した。

本比較例5に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は28であった。

### 5 (試験例5)

15

20

充填材の貫通孔の長手方向の長さが60mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例13と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本試験例 5 に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は 2 4 0 10 であった。

# (実施例16)

平均粒径  $10 \mu$  mのタルク 40 重量部、平均粒径  $9 \mu$  mのカオリン 10 重量部、平均粒径  $9.5 \mu$  mのアルミナ 17 重量部、平均粒径  $5 \mu$  mの水酸化アルミニウム 16 重量部、平均粒径  $10 \mu$  mのシリカ 15 重量部、平均粒径  $10 \mu$  mのグラファイト 3 重量部、成形助剤(エチレングリコール) 10 重量部、水 18 重量部加えて混練して原料ペーストを調製した。

次に、上記原料ペーストを押出成形機に充填し、押出速度10cm/分にてセラミック成形体を作製し、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させて図1に示したハニカムフィルタ10と略同形状のセラミック乾燥体とした。

次に、実施例13と同様にして充填材ペーストを調製し、上記セラミック乾燥体の封口処理を行った。このとき、上記充填材ペーストは、焼成後に形成された 充填材の貫通孔の長手方向の長さが3.75mmとなるように充填した。

そして、上記封口処理を行ったセラミック乾燥体を、実施例13と同条件で脱 25 脂、焼成処理を行って図1に示したような円柱形状のコージェライトからなるハ ニカムフィルタを製造した。

このようにして製造したハニカムフィルタの気孔率は40%であり、曲げ強度は8MPaであった。また、充填材の貫通孔の長手方向の長さは3.75mmで

WO 03/093657

PCT/JP03/04479

あり、上記ハニカムフィルタの曲げ強度と、充填材の長さとの積は30であった。 (実施例17)

37

充填材の貫通孔の長手方向の長さが12mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例16と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例17に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は96 であった。

#### (実施例18)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが25mmとなるように充填材ペーストの充 10 填を行ったほかは、実施例16と同様にコージェライトからなるハニカムフィル タを製造した。

本実施例18に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は20 0であった。

# (比較例 6)

15 充填材の貫通孔の長手方向の長さが3mmとなるように充填材ペーストの充填 を行ったほかは、実施例16と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタ を製造した。

本比較例6に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は24であった。

# 20 (試験例 6)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが28mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例16と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本試験例 6 に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は 2 2 4 25 であった。

#### (実施例19)

平均粒径 1 0 μ mのタルク 4 0 重量部、平均粒径 9 μ mのカオリン 1 0 重量部、 平均粒径 9.5 μ mのアルミナ 1 7 重量部、平均粒径 5 μ mの水酸化アルミニウ

10

20

ム16重量部、平均粒径 $10\mu$ mのシリカ15重量部、平均粒径 $10\mu$ mのグラファイト25重量部、成形助剤(エチレングリコール)15重量部、及び、水20重量部を混練して原料ペーストを調製した。

次に、上記原料ペーストを押出成形機に充填し、押出速度10cm/分にて図1に示したハニカムフィルタ10と略同形状のセラミック成形体を作製し、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させてセラミック乾燥体とした。

次に、実施例13と同様にして、充填材ペーストを調製し、上記セラミック乾燥体の封口処理を行った。このとき、上記充填材ペーストは、焼成後に形成される充填材の貫通孔の長手方向の長さが6.3mmとなるように充填した。

そして、実施例13と同条件で、上記封口処理を行ったセラミック乾燥体の脱脂、焼成処理を行うことにより、図1に示したような、円柱形状のコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

このようにして製造したハニカムフィルタの気孔率は55%であり、曲げ強度 15 は4.7MPaであった。また、充填材の貫通孔の長手方向の長さは6.3mm であり、上記ハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は30であった。 (実施例20)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが23mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例19と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例20に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は10 8であった。

#### (実施例21)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが42.6mmとなるように充填材ペースト 25 の充填を行ったほかは、実施例19と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例21に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は20 0であった。

#### (比較例7)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが6mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例19と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

5 本比較例7に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は28であった。

#### (試験例7)

10

25

充填材の貫通孔の長手方向の長さが43mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例19と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本試験例7に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は202 であった。

#### (実施例22)

平均粒径 $10\mu$ mの $9\nu$ 040重量部、平均粒径 $9\mu$ mのカオリン10重量部、 平均粒径 $9.5\mu$ mのアルミナ17重量部、平均粒径 $5\mu$ mの水酸化アルミニウム16重量部、平均粒径 $10\mu$ mのシリカ15重量部、平均粒径 $10\mu$ mのグラファイト40重量部、成形助剤(エチレングリコール)25重量部、及び、水30重量部を混練して原料ペーストを調製した。

次に、上記原料ペーストを押出成形機に充填し、押出速度10cm/分にて図 1に示したハニカムフィルタ10と略同形状のセラミック成形体を作製し、上記 セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させてセラミック乾燥体と した。

次に、実施例13と同様にして、充填材ペーストを調整し、上記セラミック乾燥体の封口処理を行った。このとき、上記充填材ペーストは、焼成後に形成される充填材の貫通孔の長手方向の長さが10mmとなるように充填した。

そして、実施例13と同条件で、上記封口処理を行ったセラミック乾燥体の脱脂、焼成処理を行うことにより、図1に示したような、円柱形状のコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

このようにして製造したハニカムフィルタの気孔率は70%であり、曲げ強度は3.0MPaであった。また、充填材の貫通孔の長手方向の長さは10mmであり、上記ハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は30であった。

(実施例23)

5 充填材の貫通孔の長手方向の長さが38mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例22と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例23に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は11 4であった。

10 (実施例24)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが66mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例22と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本実施例24に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は19 15 8であった。

(比較例8)

充填材の貫通孔の長手方向の長さが9mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例22と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

20 本比較例8に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は27であった。

(試験例8)

25

充填材の貫通孔の長手方向の長さが70mmとなるように充填材ペーストの充填を行ったほかは、実施例22と同様にコージェライトからなるハニカムフィルタを製造した。

本試験例8に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの積は210であった。

このようにして製造した実施例 $1\sim24$ 、比較例 $1\sim8$ 、及び、試験例 $1\sim8$  に係るハニカムフィルタを主に構成するセラミック材料、曲げ強度(MPa)、気孔率 (%) 及び充填材の長さ (mm) を下記表1にまとめる。

表1\_\_\_

	- <del>2X 1</del>					
		セラミック材料	曲げ強度 (MPa)	気孔率 (%)	充填材長さ (mm)	積(注1)
	実施例1	炭化珪素	40	40	0. 75	30
	実施例2	炭化珪素	40	40	3	120
	実施例3	炭化珪素	40	40	5	200
5	実施例4	炭化珪素	7	60	4. 3	30. 1
	実施例5	炭化珪素	7	60	15	105
	実施例6	炭化珪素	7	60	28. 5	199. 5
	実施例7	炭化珪素	20	50	1. 5	30
	実施例8	炭化珪素	20	50	6	120
	実施例9	炭化珪素	20	50	10	200
	実施例10	炭化珪素	60	30	0. 5	30
	実施例11	炭化珪素	60	30	2	120
10	実施例12	炭化珪素	60	30	3. 3	198
	実施例13	コージェライト	4	60	7. 5	30
	実施例14	コージェライト	4	60	20	80
	実施例15	コージェライト	4	60	50	200
	実施例16	コージェライト	8	40	3. 75	30
	実施例17	コージェライト	8	40	12	96
	実施例18	コージェライト	8	40	25	200
16	実施例19	コージェライト	4. 7	55	6. 3	30
15	実施例20	コージェライト	4. 7	55	23	108
	実施例21	コージェライト	4. 7	55	43	200
	実施例22	コージェライト	3	70	10	30
	実施例23	コージェライト	3	70	38	114
	実施例24	コージェライト	3	70	66	198
	比較例1	炭化珪素	40	40	0. 5	20
	比較例2	炭化珪素	7	60	4	28
20	比較例3	炭化珪素	20	50	1	20
	比較例4	炭化珪素	60	30	0. 3	18
	比較例5	コージェライト	44	60	7	28
	比較例6	コージェライト	88	40	3	24
	比較例7	コージェライト	4. 7	55	6	28
	上較例8	コージェライト	3	70	9	27
	試験例1	炭化珪素	40	40	6	240
	試験例2	炭化珪素	7	60	30	210
25	試験例3	炭化珪素	20	50	12	240
	試験例4	炭化珪素	60	30	4	240
	試験例5	コージェライト	4	60	60	240
	試験例6	コージェライト	8	40	28	224
	試験例7	コージェライト	4. 7	55	43	202
	試験例8	コージェライト	3	70	70	210
	24-4 \ ##		A 44 1874 PT .	1 1-4-11-5		. —

注1) 積:ハニカムフィルタの曲げ強度×充填材の長さ

実施例 $1\sim24$ 、比較例 $1\sim8$ 、及び、試験例 $1\sim8$ に係るハニカムフィルタの性状評価試験として、各実施例、比較例、及び、試験例に係るハニカムフィルタの初期背圧を流速が $13\,\mathrm{m/s}$ のエアーを吹き込むことで測定した。

次に、各実施例、比較例、及び、試験例に係るハニカムフィルタをエンジンの排気通路に配設した図6に示したような排気ガス浄化装置に設置し、上記エンジンを回転数  $3000 \, \mathrm{mi \ n^{-1}}$ 、トルク  $50 \, \mathrm{Nm} \, \mathrm{mod} \, 10$  時間運転して排気ガスの浄化を行った。そして、上記耐久性試験を行った後、各ハニカムフィルタを取り出し、目視によりクラックの有無等を確認した。さらに、上記耐久試験後に、クラックが発生していなかったハニカムフィルタについて、上記耐久試験を  $300 \, \mathrm{mod} \, \mathrm{mod$ 

結果を下記表2に示す。

15

10

20

表 2

	表 2			
		初期背圧	クラックの有無	
		(kPa)	耐久試験後	ヒートサイクル試験後
	実施例1	10.0	無	無
	実施例2	10. 5	無	無
	実施例3	11.0	無	無
5	実施例4	8. 0	無	無
	実施例5	8. 3	無	無
	実施例6	8. 5	無	無
	実施例7	8. 5	無	無
	実施例8	8. 8	無	無
	実施例9	9. 0	無	無
	実施例10	12.0	無	無
10	実施例11	12. 5	無	無
10	実施例12	13. 2	無	無
	実施例13	7. 0	無無	無
	実施例14	7. 5	無	無
	実施例15	7.8	無	無
	実施例16	8.0	無	無
	実施例17	8. 2	無	無
	実施例18	9.0	無	無
15	実施例19	7. 7	無	無
	実施例20	7. 9	無	無
	実施例21	8. 3	無	無
	実施例22	7. 0	無	無
	実施例23	7.3	無	無
	実施例24	7. 5	無	無
	上較例1	5. 0	有	
20	比較例2	7.0	有	
20	比較例3	8. 0	有	
	上較例4	10.0	有	
	比較例5	6. 0	有	
	比較例6	7.0	有	
	比較例7	6. 3	有	
	比較例8	5. 3	有	
	試験例1	15.0	無	有
25	試験例2	12.0	無	有
	試験例3	14.0	無	有
	試験例4	18.0	無	有
	試験例5	10.0	無	有
	試験例6	11.0	無	有
	試験例7	10. 2	無	有
	試験例8	10.0	無	有

15

20

25

表 2 に示した通り、実施例  $1\sim 2$  4 に係るハニカムフィルタは、初期背圧の値が  $7\sim 1$  3. 2 k P a と低く、また、貫通孔の内部に流入してきた排気ガスの圧力による衝撃に起因するクラックも観察されず、上記耐久試験後の背圧もさほど高くなっていなかった。 さらに、ヒートサイクル試験後においても、クラックは観察されなかった。

一方、比較例1~8に係るハニカムフィルタには、初期背圧の値が5~10k Paと低いものであったが、貫通孔の内部に流入してきた排気ガスの圧力による 衝撃に起因するクラックが、最も衝撃を受ける排気ガス流出側の充填材が充填さ れた部分の壁部(隔壁)を中心に発生していた。

10 また、気孔率が最も低く、充填材の長さが最も短い比較例4に係るハニカムフィルタでは、上記充填材が排気ガスの圧力により抜け落ちてしまっていた。

また、試験例1~8に係るハニカムフィルタは、初期背圧の値が10~18k Paと高く、また、貫通孔の内部に流入してきた排気ガスの圧力による衝撃に起 因するクラックは観察されなかったが、上記耐久性試験後の背圧が非常に高くなっており、ヒートサイクル試験後ではクラックが発生していた。

即ち、実施例1~24に係るハニカムフィルタは、エンジンから排出される排 気ガスの圧力による衝撃によってはクラックが発生することがなく、耐久性に優 れるとともに、パティキュレート捕集中の背圧がすぐに高くなることもないため、 ハニカムフィルタの再生処理を頻繁に行う必要がなく、フィルタとして充分に機 能するものであった。

一方、比較例1~8に係るハニカムフィルタは、エンジンから排出される排気 ガスの圧力による衝撃により、充填材が充填された部分の壁部(隔壁)にクラッ クが発生したり、充填材の抜け落ちが発生したりし、耐久性に劣るものであった。 また、充填材の抜け落ちが発生していないハニカムフィルタであっても、発生し たクラックから排気ガスが漏出してしまい、フィルタとして充分に機能すること ができないものであった。

また、試験例1~8に係るハニカムフィルタは、エンジンから排出される排気 ガスの圧力による衝撃によりすぐにクラックが発生することはないが、実施例1

20

~18に係るハニカムフィルタに比べて、濾過可能領域が小さくなっていたため、 初期背圧が高く、パティキュレート捕集中の背圧がすぐに高くなり、長期間使用 しているとクラックが発生するものであった。

なお、実施例19~21及び比較例7の結果から、気孔率55%のコージェライトからなるハニカムフィルタは、曲げ強度が4.7MPaであり、耐久試験においてクラックを生じないためには、充填材の長さを6.3mm以上にする必要があることが分かった。また、実施例13~15及び比較例5の結果から、気孔率60%のコージェライトからなるハニカムフィルタは、曲げ強度が4MPaであり、耐久試験においてクラックを生じないためには、充填材の長さを7.5mm以上にする必要があることが分かった。また、実施例22~24及び比較例8の結果から、気孔率70%のコージェライトからなるハニカムフィルタは、曲げ強度が4MPaであり、耐久試験においてクラックを生じないためには、充填材の長さを10mm以上にする必要があることが分かった。

従って、特開2003-3823号公報の実施例に記載されているハニカムフィルタは、コージェライトからなり、隔壁の気孔率が55~70%、充填材の長さが2~6mmであることから、いずれも充填材の長さが短く、耐久試験においてクラックを生じてしまうと推定される。

また、図8 (a) は、実施例 $1\sim24$ に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの関係を示したグラフであり、(b)は、比較例 $1\sim8$ 、及び、試験例 $1\sim8$ に係るハニカムフィルタの曲げ強度と充填材の長さとの関係を示したグラフである。なお、図8 (a)、(b)において、下側の曲線が、ハニカムフィルタの曲げ強度 $F\alpha$ と、充填材の長さLとの積が30となる曲線であり、上側の曲線が、ハニカムフィルタの曲げ強度 $F\alpha$ と、充填材の長さLとの積が200となる曲線である。

25 図8(a)に示したように、実施例 $1 \sim 24$ に係るハニカムフィルタの曲げ強度  $F\alpha$ と、充填材の長さしとの積の値は、いずれも上下の曲線の間に存在しており、一方、図8(b)に示したように、比較例 $1 \sim 8$  に係るハニカムフィルタの曲げ強度 $F\alpha$ と、充填材の長さしとの積の値は、いずれも下側の曲線よりも下に

存在している。また、試験例 $1\sim8$ に係るハニカムフィルタ曲げ強度 $F\alpha$ と、充填材の長さLとの積の値は、いずれも上側の曲線よりも上に存在している。

上記実施例及び比較例についての性状評価試験の結果と、図8に示したグラフとにより、ハニカムフィルタの曲げ強度 $F\alpha$ と、充填材の長さLとの積の値を、図8に示した下側の曲線よりも上に存在するようにすることで(即ち、 $F\alpha$ ×Lを30以上とすることで)、エンジンから排出される排気ガスの圧力による衝撃により、充填材が充填された部分の壁部(隔壁)にクラックが発生したり、充填材の抜け落ちが発生したりすることがなく、耐久性に優れるハニカムフィルタとすることができる。

10 さらに、上記試験例についての性状評価試験の結果と、図8に示したグラフとにより、ハニカムフィルタの曲げ強度 Fαと、充填材の長さLとの積の値を、図8に示した上側の曲線よりも下に存在するようにすることで(即ち、Fα×Lを200以下とすることで)、初期背圧が低く、パティキュレート捕集中の背圧がすぐに高くならず、長期間使用可能なハニカムフィルタとすることができる。

15

#### 産業上の利用可能性

本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタは、上述の通りであるので、使用中 にクラックや充填材の抜け落ちが発生することがなく、耐久性に優れたものとな る。

20

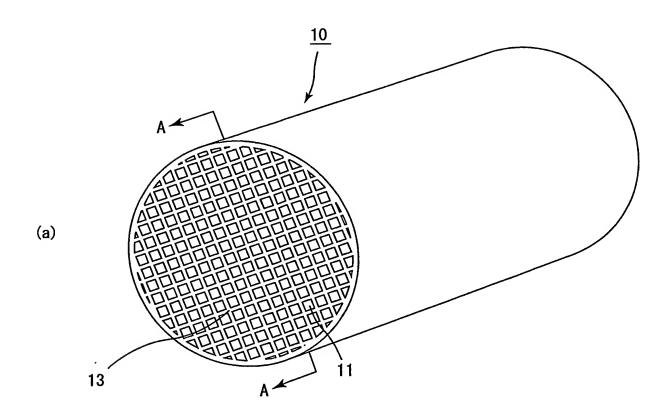
48

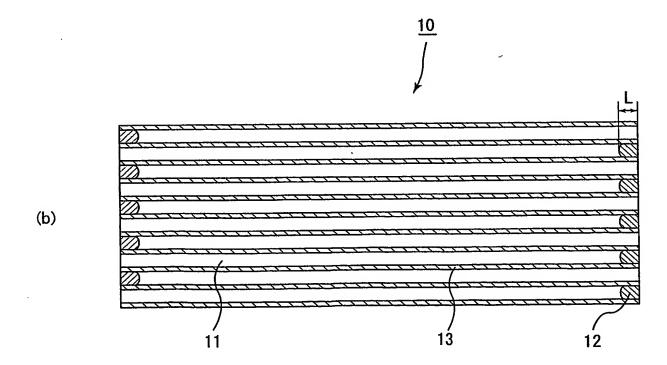
#### 請求の範囲

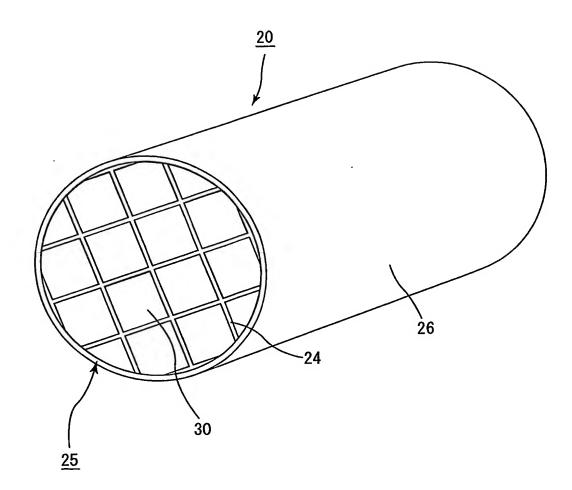
1. 多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された、多孔質セラミックからなる柱状体の一方の端部で、前記貫通孔のうち、所定の貫通孔が充填材により充填され、一方、前記柱状体の他方の端部で、前記一方の端部で前記充填材により充填されていない貫通孔が充填材により充填され、前記壁部の一部又は全部が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハニカムフィルタであって、

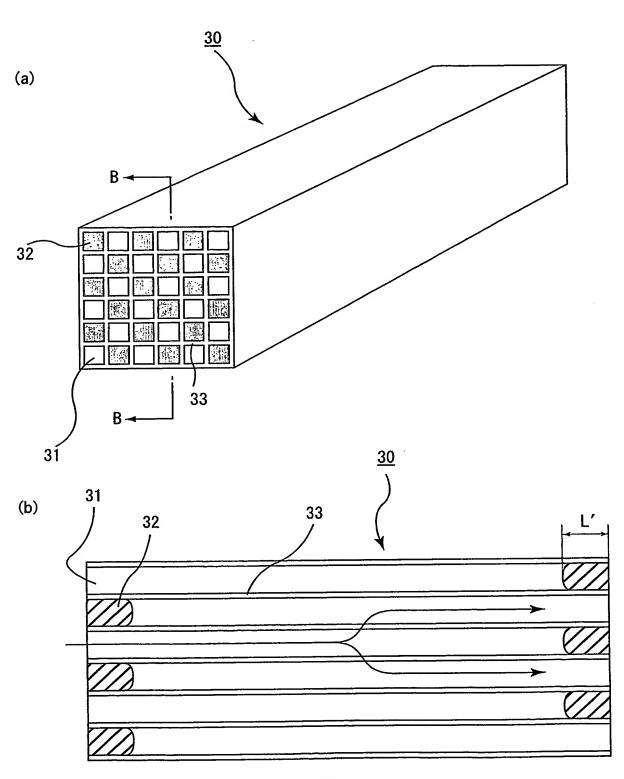
前記排気ガス浄化用ハニカムフィルタの曲げ強度  $F\alpha$ (MPa)と、前記充填 10 材の前記貫通孔の長手方向の長さ L(mm)とが、 $F\alpha \times L \ge 30$  の関係を有す ることを特徴とする排気ガス浄化用ハニカムフィルタ。

- 2. 排気ガス浄化用ハニカムフィルタの曲げ強度 F α (M P a) と、充填材の貫通孔の長手方向の長さL (mm) とが、F α×L≤200の関係を有する請求の
   15 範囲第1項記載の排気ガス浄化用ハニカムフィルタ。
  - 3. 触媒が付与されている請求の範囲第1又は2項に記載の排気ガス浄化用ハニカムフィルタ。
- 20 4. 気流により逆洗浄を行うことにより、捕集して堆積した微粒子が除去される 請求の範囲第1~3項のいずれかに記載の排気ガス浄化用ハニカムフィルタ。
- 5. 排気ガスを加熱して流入させることにより、捕集して堆積した微粒子が除去 される請求の範囲第1~3項のいずれかに記載の排気ガス浄化用ハニカムフィル 25 夕。

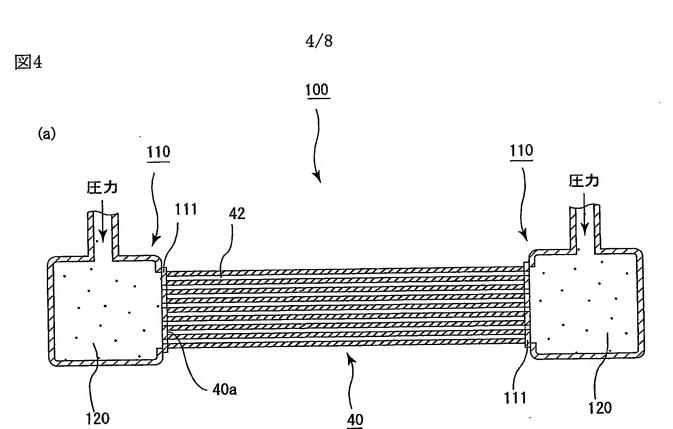


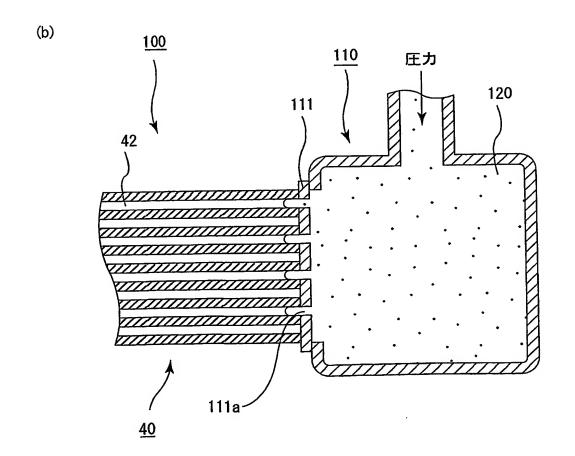






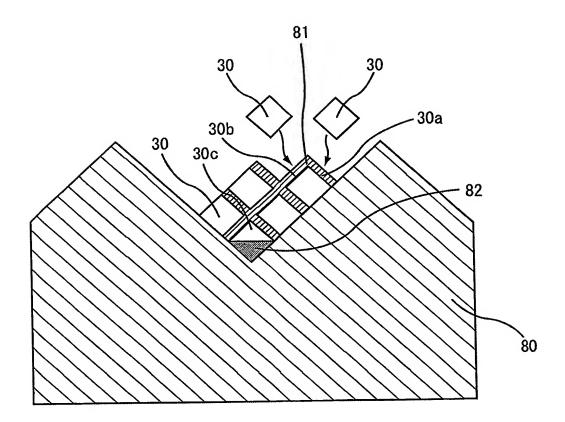
B-B線断面図

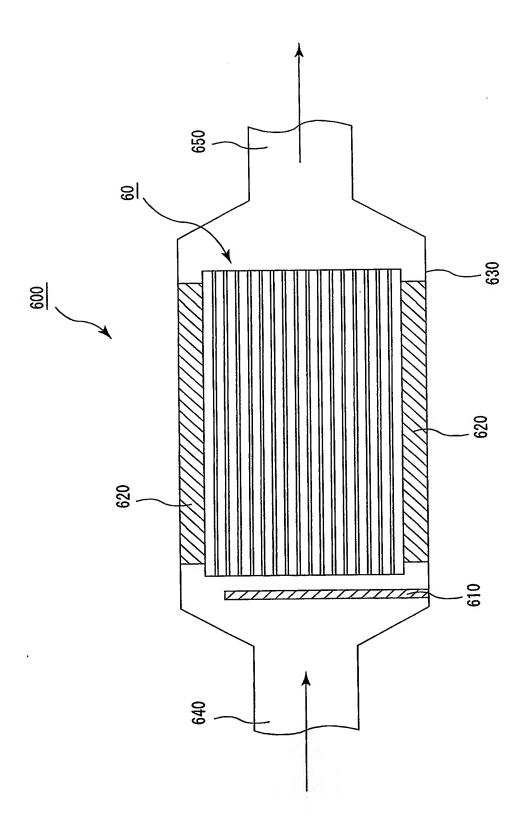




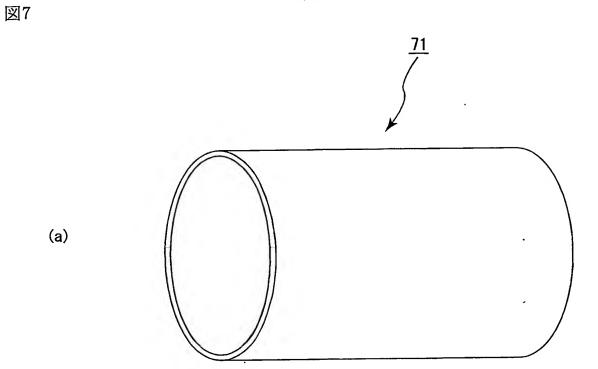
WO 03/093657 PCT/JP03/04479

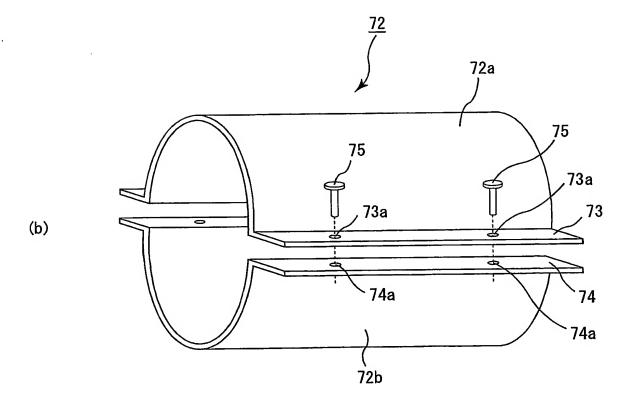
5/8



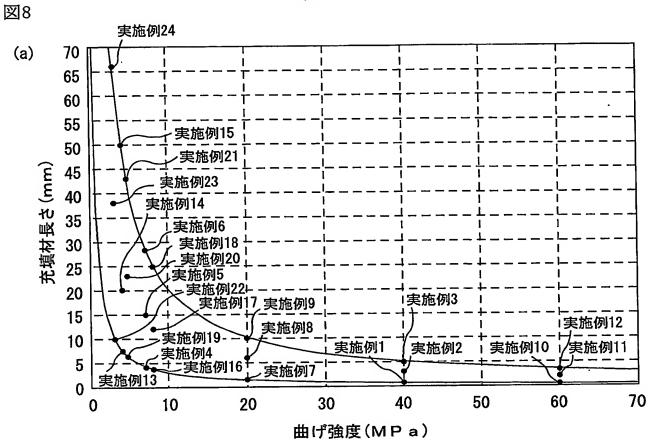


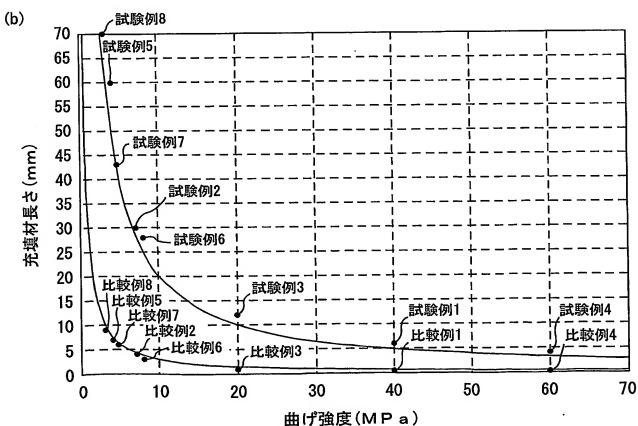
7/8





8/8





# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/04479

	A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>7</sup> F01N3/02				
1116.	INC.OI FOIMS/OZ				
According to	o International Patent Classification (IPC) or to both nat	tional classification and IPC	·		
	S SEARCHED				
Minimum do	ocumentation searched (classification system followed b C1 F01N3/02, B01D46/00, B01D3	by classification symbols) 9/20			
	_ ,,		i		
Jitsu	ion searched other than minimum documentation to the ayo Shinan Koho 1922–1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho			
Kokai	Jitsuyo Shinan Koho 1971–2003				
Electronic da	ata base consulted during the international search (name	e of data base and, where practicable, sear	ch terms used)		
	·				
C. DOCUI	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	Citation of document, with indication, where ap		Relevant to claim No.		
X Y	EP 0990777 A (IBIDEN CO., LT 05 April, 2000 (05.04.00),	D.),	1,2,5 3,4		
*	Full text		,• <del>-</del>		
	& JP 2000-167329 A				
X	EP 1142619 A (IBIDEN CO., LT	D.),	1,2 3,4		
Y	10 October, 2001 (10.10.01), Full text				
	& JP 2001-96113 A & WO 01/23069 A				
Y	JP 8-232639 A (NGK Insulator		3,4		
}	10 September, 1996 (10.09.96) Par. Nos. [0006], [0007]	,			
	(Family: none)				
	l.				
1			1		
			1 1		
Furthe	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.			
* Special	categories of cited documents: ent defining the general state of the art which is not	"T" later document published after the inte priority date and not in conflict with th	ne application but cited to		
considered to be of particular relevance understand the principle or theory understand the principle or the principle			erlying the invention claimed invention cannot be		
date  date  "L"  date  considered novel or cannot be considered no			red to involve an inventive		
cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  "Y" document of particular relevance; the considered to involve an inventive steps			p when the document is		
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means combined with one or more other sucl combination being obvious to a person			skilled in the art		
than the	than the priority date claimed				
Date of the actual completion of the international search 13 August, 2003 (13.08.03)  Date of mailing of the international search report 26 August, 2003 (26.08.03)					
	·				
Name and m.	nailing address of the ISA/ nese Patent Office	Authorized officer			
Telephone NO					



発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Int. Cl7 F01N 3/02

#### 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' F01N 3/02, B01D 46/00, B01D 39/20

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2003年

日本国実用新案登録公報 1996-2003年

日本国登録実用新案公報 1994-2003年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

	りと思うられる人民	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
. Y	EP 0990777 A (IBIDEN CO,LTD.), 2000.0 4.05,全文 & JP 2000-167329 A	1, 2, 5 3, 4
X Y	EP 1142619 A (IBIDEN CO, LTD.), 2001. 1 0. 10, 全文 & JP 2001-96113 A & WO 01/23069 A	1, 2 3, 4

#### |X|| C欄の続きにも文献が列挙されている。

| パテントファミリーに関する別紙を参照。

- \* 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日. 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13.08.03

国際調査報告の発送日

26.08.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 特許庁審査官(権限のある職員)

亀田 貴志



3 T 9719

電話番号 03-3581-1101 内線 3355

	国际附近和 国际 川政田 グープ ひ		
C(続き).	関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*		の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 8-232639 A (日本碍子株式会社), 1999. 10, 段落0006、0007 (ファミリーなし)		3, 4